

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : **2001-181386**

(43)Date of publication of application : **06.07.1999**

(51)Int.Cl. C09J123/20
B60R 13/00
B60R 13/02
C09J125/04
C09J157/02
C09J161/14
C09J191/06
C09J193/04
C09J201/02

(21)Application number : **09-357653** (71)Applicant : **HITACHI KASEI
POLYMER CO LTD
DAIHATSU MOTOR CO
LTD**
(22)Date of filing : **25.12.1997** (72)Inventor : **FUJITA YASUHIRO
UZUNO YOSHINOBU
YAMAGUCHI SUSUMU**

(54) HOT-MELT ADHESIVE COMPOSITION AND PRODUCTION OF AUTOMOTIVE INTERIOR MATERIAL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a hot-melt adhesive compsn. which is excellent in heat resistance and is used for bonding lowly polar adherends to each other or a lowly polar adherend to a highly polar adherend and to provide an automotive interior material produced by using the same.

SOLUTION: This hot-melt adhesive compsn. contains, as essential ingredients, (A) 100 pts.wt. crystalline polybutylene having a melt index (190°C, 2.16 kgf/cm²) of 20-2,000 g/10 min, (B) 20-200 pts.wt. hydrogenated tackified resin, (C) 20-200 pts.wt. at least one nonhydrogenated tackified resin selected from among terpene-modified phenol resins, arom. petroleum resins, styrenic resins, and rosin-base resins, and (D) 0.1-100 pts.wt. polypropylene-based wax, and amt. of ingredient A accounting for 10-60 wt.% of the compsn.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 12.11.2004

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other

than the examiner's decision of rejection
or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of requesting appeal against
examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] (A) 20-2,000g of melt indexes, 10 minutes (190 degrees C) As opposed to the crystalline polybutylene 100 weight section of 2.16 kgf/cm² (B) Hydrogenation system tackifier resin 20 - the 200 weight sections, (C) terpene denaturation phenol resin, At least one sort of non-hydrogenation tackifier resin 20 chosen from the group which consists of aromatic series system petroleum resin, styrene resin, and rosin system resin - the 200 weight sections, and (D) polypropylene system wax 0.1 - the 100 weight sections are used as an indispensable component. And the hot-melt-adhesive constituent characterized by the loadings of this crystalline polybutylene (A) being 10 - 60% of the weight of the whole constituent.

[Claim 2] The hot-melt-adhesive constituent according to claim 1 with which it comes to carry out 20-200 weight section content of at least one sort of resin of 120 degrees C or more of ring and ball method softening temperatures in hydrogenation system tackifier resin (B) and/or non-hydrogenation tackifier resin (C) per this crystalline (polybutylene A) 100 weight section.

[Claim 3] The hot-melt-adhesive constituent according to claim 1 or 2 whose degree of crystallinity by the X-ray diffraction method of this crystalline polybutene is 30 - 80%.

[Claim 4] The hot-melt-adhesive constituent of any one publication of claim 1-3 used for adhesion with low polar adherends or this low polar adherend, and high polarity adherend.

[Claim 5] In the process which pastes up textile tabulation hide material on the polyolefine Plastic solid for automobiles The hot melt adhesive of any one publication of claim 1-4 is applied to the front face of this polyolefine Plastic solid and/or this textile tabulation hide material. The manufacture approach of the interior material for automobiles characterized by pasting up this polyolefine Plastic solid and textile tabulation hide material where it was activated by reheating this hot-melt-adhesive constituent and adhesive strength is actualized, after immediately after spreading or the hot-melt-adhesive constituent after spreading carried out cooling solidification.

[Claim 6] the coverage of this hot-melt-adhesive constituent -- 20 - 500 g/m² it is -- approach according to claim 5.

[Claim 7] The approach according to claim 5 or 6 activation temperature is 90-150 degrees C.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the manufacture approach of the interior material for automobiles which comes to use a hot-melt-adhesive constituent and this adhesives constituent. It is related with the manufacture approach of the interior material for automobiles which comes to use a hot-melt-adhesive constituent and this adhesives constituent excellent in the thermal resistance especially used for adhesion with the low polar adherends like polyolefine or this, and high polarity adherends, such as essential material and a textile.

[0002]

[Description of the Prior Art] Hot melt adhesive is used in various industries from advantages, such as environmental compatibility, for the simple nature that adhesion is completed, a non-solvent, etc., if it applies in the state of melting and cools. As a base polymer, ethylene system copolymers, such as an ethylene-vinylacetate copolymer, polyethylene, amorphous polypropylene, crystalline polypropylene, crystalline polybutylene, a styrene system block copolymer, a polyamide, polyester, etc. were mainly used, a variety tackifier, oil, and other wax and various additives were added to this, and hot melt adhesive has been obtained. However, although it is possible to discover the adhesive ability of high polarity objects, such as low polar adherends, such as polypropylene, or this and woody material, and a textile, when an ethylene system copolymer, polyethylene, amorphous polypropylene, and a styrene system block copolymer are made into a base polymer, it has the fault of being scarce, in thermal resistance.

[0003] On the other hand, when crystalline polypropylene, a polyamide, polyester, etc. are used, while the thermal resistance of the hot melt itself can be obtained, the adhesive property of high polarity objects, such as low polar adherends, such as polypropylene, or this and woody material, and a textile, is inadequate. Moreover, the example which made crystalline polybutylene the base polymer of hot melt adhesive is also known (engineering data of shell JAPAN, Inc.). Specifically, the example using the constituent which consists of polybutylene and a tackifier is shown.

[0004] However, about crystalline polybutylene, how to maintain the crystalline control by how to use tackifier resin and other compounding agents or adhesive balance was not known, but it was lacking in practicality until now.

[0005] The solvent type adhesive which uses chloroprene system rubber as a principal

component on the other hand in case the interior material for automobiles is manufactured by pasting up textile tabulation hide material on the polyolefine Plastic solid like polypropylene was applied with the spray etc., and the method of carrying out lamination ***** adhesion of the textile tabulation hide material after solvent desiccation has been taken.

[0006] However, since a solvent vaporized in atmospheric air by such manufacture approach, there was a possibility of causing environmental pollution and it was not desirable in work environment nature. Moreover, since it needs to press epidermis material until adhesion is completed when workability is not only low, but sticks on a crevice, since solvent type adhesive requires long duration by the completion of adhesion, workability becomes low further. Furthermore, solvent type adhesive also had the fault that after shaping adhesion was inferior to especially an early creep property since the residual solvent of a minute amount exists over several hours.

[0007] On the other hand, although the problem of the above-mentioned environmental pollution nature or work environment nature was solved when hot melt adhesive was used, the hot melt adhesive proposed from the former was not enough as the adhesive property over polypropylene, and it was difficult to satisfy the heat-resistant property of about 80 degrees C required of this application.

[0008]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] Therefore, the purpose of this invention is to offer the manufacture approach of the interior material for automobiles which comes to use a new hot-melt-adhesive constituent and this adhesives constituent.

[0009] Other purposes of this invention are to offer the manufacture approach of the interior material for automobiles which comes to use a hot-melt-adhesive constituent and this adhesives constituent excellent in the thermal resistance which the low polar adherends, or this and the essential material like polyolefine, a textile, etc. solve, and is used for adhesion with high polarity adherend.

[0010]

[Means for Solving the Problem] Many of these purposes are attained by following the (1) - (7).

[0011] (1) 2,000g / [the (A) melt index 20 -] 10 minutes (190 degrees C) As opposed to the crystalline polybutylene 100 weight section of 2.16 kgf/cm² (B) Hydrogenation system tackifier resin 20 - the 200 weight sections, (C) terpene denaturation phenol resin, At least one sort of non-hydrogenation tackifier resin 20 chosen from the group which consists of aromatic series system petroleum resin, styrene resin, and rosin system resin - the 200 weight sections, and (D) polypropylene system wax 0.1 - the 100 weight sections are used as an indispensable component. And the hot-melt-adhesive constituent characterized by the loadings of this crystalline polybutylene (A) being 10 - 60% of the weight of the whole constituent.

[0012] (2) A hot-melt-adhesive constituent given in the above (1) with which it comes to carry out 20-200 weight section content of at least one sort of resin of 120 degrees C or more of ring and ball method softening temperatures in hydrogenation system tackifier resin (B) and/or non-hydrogenation tackifier resin (C) per this crystalline (polybutylene A) 100 weight section.

[0013] (3) The above (1) whose degree of crystallinity by the X-ray diffraction method of this crystalline polybutene is 30 - 80%, or a hot-melt-adhesive constituent given in (2).

[0014] (4) The hot-melt-adhesive constituent of any one publication of aforementioned (1) - (3) used for adhesion with low polar adherends or this low polar adherend, and high polarity adherend.

[0015] (5) In the process which pastes up textile tabulation hide material on the polyolefine Plastic solid for automobiles The above (1) The hot melt adhesive of any one publication of - (4) is applied to the front face of this polyolefine Plastic solid and/or this textile tabulation hide material. The manufacture approach of the interior material for automobiles characterized by pasting up this polyolefine Plastic solid and textile tabulation hide material where it was activated by reheating this hot-melt-adhesive constituent and adhesive strength is actualized, after immediately after spreading or the hot-melt-adhesive constituent after spreading carried out cooling solidification.

[0016] (6) the coverage of this hot-melt-adhesive constituent -- 20 - 500 g/m² it is -- approach given in the above (5).

[0017] (7) An approach the above (5) whose activation temperature is 90-150 degrees C, or given in (6).

[0018]

[Embodiment of the Invention] the crystalline polybutylene in this invention -- a melt index -- 20-2,000g/10min -- it is necessary to use the thing for 50-1000g / 10 minutes preferably for 10 minutes (190 degrees C and 2.16 kgf/cm²) When degree of crystallinity is less than 30%, there is no sufficient thermal resistance, and when larger than 90%, sufficient open time is not obtained. Moreover, there is little fluidity that melt in DEKKUKUSU is less than 20, since it is hyperviscosity, workability falls, and if larger than 2,000, sufficient thermal resistance will not be discovered. 40 - 60% of thing is preferably used for the degree of crystallinity according [such crystalline polybutylene] to an X-ray diffraction method (macromolecule important **, the 1994 Maruzen Co., Ltd. issue, p110-113) 30 to 80%. That is, if thermal resistance with degree of crystallinity sufficient at less than 30% may not be discovered and 80% is exceeded on the other hand, sufficient open time may not be obtained.

[0019] Moreover, the loadings of the crystalline polybutylene in this invention are 10 - 60% of the weight of the whole system. That is, at less than 10 % of the weight, sufficient thermal resistance is not discovered, and on the other hand, if 60 % of the weight is exceeded, a fluidity will cause the fall of workability few.

[0020] Furthermore, to the hot-melt-adhesive constituent of this invention, polymers, such as polyethylene, polypropylene, ethylene propylene rubber, an ethylene butylene copolymer, styrene-ethylene-butylene copolymer rubber, and styrene-ethylene-propylene copolymer rubber, are mixable again for the purpose of viscosity accommodation, accommodation of a crystallization rate, amelioration of the adhesion property at the time of low temperature, etc. The amount used is 30 or less % of the weight preferably 50 or less % of the weight to the whole adhesives constituent.

[0021] The hydrogenation system tackifier resin in this invention is used in order to raise an adhesive property with low polar objects, such as polypropylene. As an example, it is C5. A system and C9 A system, and C5 - C9 The water garnish of the water garnish of copolymerization system petroleum resin, a terpene, and a denaturation terpene etc. can be mentioned. the loadings of this hydrogenation system tackifier resin -- the crystalline polybutylene 100 weight section -- receiving -- the 20 - 200 weight section -- it is 30 - 50 weight section preferably. That is, under in 20

weight sections, sufficient adhesive property is not acquired to low polar objects, such as polypropylene, and on the other hand, if the 200 weight sections are exceeded, sufficient adhesive property will not be acquired to high polarity objects, such as woody material and a textile.

[0022] The non-hydrogenation tackifier resin in this invention is used together in order to improve an adhesive property with high polarity objects, such as woody material and a textile. as such non-hydrogenation tackifier resin -- terpene denaturation phenol resin, aromatic series system petroleum resin, styrene resin, rosin system resin, etc. -- it is -- an independent system or two or more sorts of concomitant use systems -- it can use -- the crystalline polybutylene 100 weight section -- receiving -- the 20 - 200 weight section -- desirable -- 30 - 150 weight *****. That is, under 20 weight sections are not enough as the adhesive property over high polarity objects, such as woody material and a textile, if few, and if the 200 weight sections are exceeded on the other hand, it is not enough for the adhesive property over low polar objects, such as polypropylene.

[0023] In this invention, it is desirable to carry out 20-200 weight section content of one or more sorts of 120-150-degree C resin to the crystalline polybutylene 100 weight section into hydrogenation system tackifier resin and/or non-hydrogenation tackifier resin preferably 120 degrees C or more of ring and ball method softening temperatures. That is, when ring and ball method softening temperature uses only less than 120-degree C resin, or when there are few additions than 20 weight sections, sufficient heat-resistant property is hard to be acquired. On the other hand, if there are more additions than the 200 weight sections, solidification will be quick and sufficient open time will be hard to be obtained.

[0024] Moreover, since the adhesive property over various adherends is adjusted to the hot-melt-adhesive constituent of this invention, various tackifier resin, such as terpene resin, aliphatic series system petroleum resin, and those hydrogenated resin, is mixable.

[0025] the hot-melt-adhesive constituent of this invention -- a purpose [improvement / in polybutylene / the promotion of crystallization and the heat-resistant improvement] -- carrying out -- further -- a polypropylene system wax -- the crystalline polybutylene 100 weight section -- receiving -- the 0.1 - 100 weight section -- it comes to carry out 1-50 weight section melting mixing preferably Such a wax is a crystalline wax with a melting point of 140-160 degrees C preferably the melting point of 140 degrees C or more. When waxes other than this are used, the melting point is low and sufficient thermal resistance is not discovered. The effect which it has on the solidification rate of a polypropylene wax is very remarkable, and solidification time amount is shortened by leaps and bounds from the 0.1 weight section of the minimal value. The quick polypropylene wax of crystallization serves as a nucleating agent which promotes crystallization of polybutylene, and the mechanism of action is presumed to be what induces the whole crystallization by initiation of periphery-crystallization. Therefore, if the minimum loadings of a polypropylene system wax are the 0.1 weight section and it is fewer than this, the crystallization rate of polybutylene will be slow and sufficient solidification rate will not be obtained. Moreover, if [than the 100 weight sections] more, a solidification rate will be quick and sufficient open time will not be obtained.

[0026] The hot-melt-adhesive constituent used for this invention can carry out melting

mixing of the various additives, such as an antioxidant, an inorganic bulking agent, and a coloring agent, if needed further. The hot-melt-adhesive constituent used for this invention feeds each above-mentioned ingredient into melting stirring mixing equipment, about 150-180 degrees C, preferably, at the temperature of about 160-170 degrees C, carries out heating mixing for 1 to 3 hours, and is obtained.

[0027] In this invention, the approach by the atomization spray, the spiral spray, the curtain spray, a roll coater, etc. is mentioned as an approach of carrying out a hot-melt-adhesive constituent with ** to both high polarity both [one side or], such as low polar objects and woody material, such as polypropylene, and a textile.

[0028] Therefore, hot melt adhesive needs to have the melt viscosity suitable for these methods of application. Specifically, in the case of a spray or a curtain spray, it is 500 - 20,000 mPa-s preferably 100 to 50,000 mPa-s. When lower than 500, spilling arises at the time of spreading, and sufficient coverage cannot be secured when higher than 50,000. Moreover, the melt viscosity in roll coater spreading is 500 - 50,000 mPa-s preferably 100 to 100,000 mPa-s. When lower than 100, dripping arises, and sufficient coverage cannot be secured when higher than 100,000.

[0029] moreover, the coverage of hot melt adhesive -- 20 - 500 g/m² -- desirable -- 100 - 200 g/m² it is . 20 g/m² The following is not enough for adhesive strength and it is 500 g/m². If it exceeds, hot melt adhesive may ooze out on the front face of textile epidermis material at the time of lamination.

[0030] Moreover, if heat activating a hot-melt-adhesive constituent in this invention, it means melting or softening and actualizing adhesive strength, hot blast, infrared radiation, or a hotpress can be used as a heating means and the case of hot blast is taken for an example as temperature, 100-400 degrees C of 200-300-degree C hot blast will be used preferably.

[0031] High polarity objects, such as low polar adherend and woody material, such as polypropylene with which the hot-melt-adhesive constituent of this invention is used, and a textile, are ingredients used for the part for which thermal resistance, such as automobile interior material, is needed, and polyethylene, polypropylene, ethylene propylene rubber, etc. are mentioned as a low polar ingredient. Moreover, as a high polarity ingredient, the plastics and fiber etc. which used a tree, paper, a metal and nylon and polyester, the polycarbonate, the acrylic, etc. as the main raw material are mentioned, and these are usually used in the form of textiles, such as textile fabrics, a nonwoven fabric, and knitted fabric.

[0032] There are the inner panel of the door of an automobile, door ornament head-lining material, shock absorbing material in a trunk, a carpet in a trunk, a floor carpet, a seat sheet, etc., and, as for the interior material for automobiles in this invention, these come to paste the front face of the Plastic solid of polyolefine, especially polypropylene textiles, such as textile fabrics, knitted fabric, a nonwoven fabric, and felt.

[0033] Moreover, it means heating hot melt adhesive as being activated, carrying out melting softening in this invention, and actualizing adhesive strength, and hot blast, infrared radiation, or a hotpress is used as a heating means. On the occasion of activation, hot melt adhesive needs to be heated more than the melting point. Moreover, at the temperature far exceeding the melting point, there is also a possibility of also causing deformation of the polypropylene shaping material to which dripping omission ***** has hot melt adhesive, and hot melt was applied, or textile

tabulation hide material.

[0034] Therefore, 90-150 degrees C of hot melt temperature which activation takes are 100-140 degrees C preferably. Also when using which heating means, such as hot blast, infrared radiation, or a hotpress, it is necessary to adjust heat-source temperature and heating time so that hot melt adhesive may become this temperature requirement.

[0035] Moreover, the time of the condition in which hot melt adhesive was activated by the heating approach in the case of hot blast or infrared radiation, i.e., the heated hot melt adhesive, is not cooled completely, but skin temperature needs to perform lamination in the condition that the surface tack remains above 60 degrees C.

[0036] In the case of hot blast or infrared radiation, the heating approach needs to be stuck by pressure at the time of lamination, and, in the case of a hotpress, it needs to be stuck by pressure by the temperature of the hot melt adhesive after a press being in a condition 60 degrees C or more. the press approach which usually used metal mold uses it for sticking by pressure -- having -- the press pressure -- 0.001 - 1 kgf/cm² -- desirable -- 0.01 - 0.5 kgf/cm² it is. Press pressures are 0.001 kgf/cm². Adhesive property sufficient in the following is not acquired, but it is 1 kgf/cm². When it exceeds, there is a possibility that deformation of polypropylene shaping material may take place. Sticking-by-pressure time amount is 10 - 30 seconds, when metal mold and ambient temperature are 20 degrees C. Since hot melt adhesive does not fully solidify and solidification is completed within 30 seconds in less than 10 seconds, sticking by pressure beyond it is unnecessary.

[0037] The hot-melt-adhesive constituent of this invention can be equipped with the adhesive property of high polarity objects, such as low polar object comrades, such as polypropylene, or this and a woody agent, and cloth, and a heat-resistant property by using the polypropylene system wax which adjusts the tackifier which has crystalline polybutylene and high softening temperature, and a crystallization rate and melt viscosity.

[0038]

[Example] Hereafter, although an example explains this invention, this invention is not limited to these examples.

[0039] The hot-melt-adhesive constituent which teaches the heating kneader of 2l. of content volume 1,000g of mixture blended by the ratio shown in one to examples 1-4 and example of comparison 4 Table 1 and 2, carries out stirring mixing of this at 160 degrees C for 2 hours, and is made into the purpose was obtained. In addition, in Table 2, it wrote together also about the examples 1-4 of a comparison. The contents of the ingredient used in the example and the example of a comparison and the characteristic test approach of a hot-melt-adhesive constituent are shown below.

[0040] [The contents of the ingredient]

(1) Polybutylene (1)

DC8910 (product made from shell JAPAN, Inc.) melt index = 1000g / 10 minutes (190 degrees C and 2.160 kgf/cm²), melting point = 90-degree-C (2) polybutylene (2) DP0800 (product made from shell JAPAN, Inc.) melt index = 200g / 10 minutes (190 degrees C and 2.160 kgf/cm²), melting point = 125-degree-C (3) polybutylene (3) DP0300 (product made from shell JAPAN, Inc.) melt index = 4g / 10-minute (190-degree-C and 2.160 kgf/cm²), and melting point = 125-degree-C (4) hydrogenation system tackifier resin (1)

Al Cong P125 (Arakawa chemical-industry incorporated company make, aromatic

series system perfect hydrogenation petroleum resin) ring-and-ball-method softening temperature = 125-degree-C(5) hydrogenation system tackifier resin (2)

Al Cong P85 (Arakawa chemical-industry incorporated company make, aromatic series system perfect hydrogenation petroleum resin) ring-and-ball-method softening temperature = 85-degree-C(6) non-hydrogenation tackifier resin (1)

YS Pori Starr T130 (Yasuhara Chemical, Inc. make, terpene phenol copolymerization resin) ring-and-ball-method softening temperature = 130-degree-C(7) non-hydrogenation tackifier resin (2)

YS Pori Starr T100 (Yasuhara Chemical, Inc. make, terpene phenol copolymerization resin) ring-and-ball-method softening temperature = 100 degree-C(8) aromatic-series

system petroleum resin PETOKORU 140 (TOSOH CORP. make, non-hydrogenation aromatic series system tackifier resin) ring-and-ball-method softening temperature

=135 degree-C(9) polypropylene system wax screw call 550P (Mitsuhiro formation incorporated company make) ring and ball method softening temperature = 150-

degree-C(10) anti-oxidant IRUGA NOx 1010 (Ciba-Geigy Japan, Inc. make)

HINDATO phenolic antioxidant [the characteristic test approach of a hot-melt-adhesive constituent]

(1) Melt viscosity JIS Based on the melt viscosity measuring method of K-6862 hot melt adhesive, the melt viscosity in 180 degrees C was measured.

[0041] (2) Ring and ball method softening temperature JIS Based on the ring and ball method softening temperature measuring method of K-6863 hot melt adhesive, ring and ball method softening temperature was measured.

[0042] (3) The hot-melt-adhesive constituent was applied to the thickness of about 100 micrometers, nylon cloth with a width of face [of 25mm] and a die length of 150mm was immediately set by the polypropylene plate with the heat-resistant creep thickness of 2mm, a width of face [of 25mm], and a die length of 120mm, and what was stuck by pressure and pasted up with the hand roller was used as the test piece.

This test piece was hung at the end of cloth tabulation hide material after 24-hour care of health in 20-degree-C ambient atmosphere, the 200g load was hung in the direction of 90 degree, it was left under 80-degree C temperature conditions for 24 hours, and the peeling die length for jointing was measured.

[0043] (4) The friction test was performed in the direction of 180 degree for the same test piece as the above (9) at the rate of 200 mm/min using the tension tester under the temperature of 20 degrees C and 80 degrees C in breakaway strength.

[0044] (5) The hot-melt-adhesive constituent was applied to the thickness of about 100 micrometers on the open time polypropylene base material, and the hot-melt-adhesive constituent front face was heated at 130 degrees C by hot blast after cooling to the room temperature.

[0045] After stopping heating, the longest time amount which can stick nylon cloth was made into the open time.

[0046] (6) The shortest time amount which the cohesive failure of a hot-melt-adhesive constituent does not produce in a heat-resistant creep test was made into solidification time amount after creating the same test piece as the solidification time amount above (3).

[0047] A result is shown in Table 1 and 2.

[0048]

[Table 1]

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4
配 合 重 量 部	ポリブチレン (1) (MI 1000)	100	100	100	
	ポリブチレン (2) (MI 200)				100
	水添系粘着付与剤樹脂 (1) (軟化点: 125℃)	100	75		100
	水添系粘着付与剤樹脂 (2) (軟化点: 85℃)			40	
	未水添粘着付与剤樹脂 (1) (軟化点: 130℃)	40			40
	未水添粘着付与剤樹脂 (2) (軟化点: 110℃)		40		
	芳香族系石油樹脂 (軟化点: 135℃)			100	
	ポリプロピレン系ワックス	40	1	40	40
	酸化防止剤	1	1	1	1
物 性	熔融粘度 (mPa·s/180℃)	12,000	40,000	12,000	29,000
	環球法軟化点 (℃)	130	128	130	133
	耐熱クリープ (はく離長さ mm)	10	20	25	5
	はく離強さ (kgf/inch) 20℃	25	27	22	28
	はく離強さ (kgf/inch) 80℃	8	7	8	11
	オープンタイム (秒)	15	30	14	14
	固化時間(秒)	10	30	10	8

[0049]

[Table 2]

		比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4
配 合 重 量 部	ポリブチレン (1) (MI 1000)	100	100	100	
	ポリブチレン (3) (MI 4)				100
	水添系粘着付与剤樹脂 (1) (軟化点: 125℃)	175		100	100
	水添系粘着付与剤樹脂 (2) (軟化点: 85℃)		100		
	未水添粘着付与剤樹脂 (1) (軟化点: 130℃)			40	40
	未水添粘着付与剤樹脂 (2) (軟化点: 110℃)		40		
	芳香族系石油樹脂 (軟化点: 135℃)				
	ポリプロピレン系ワックス	40	40		40
	酸化防止剤	1	1	1	1
物 性	熔融粘度 (mPa·s/180℃)	12,000	11,000	40,000	400,000
	環球法軟化点 (℃)	130	125	122	141
	耐熱クリープ (はく離長さ mm)	全面A	全面C	全面C	2
	はく離強さ (kgf/inch) 20℃	5	30	32	11
	はく離強さ (kgf/inch) 80℃	1	4	0.5	8
	オープンタイム (秒)	15	18	80	5
	固化時間(秒)	—	—	3日	5

A: ホットメルト接着剤組成物とナイロン布の界面破壊

C: ホットメルト接着剤組成物の凝集破壊

[0050] It is clear comparatively that said example's it can change in a procedure and an ingredient, without deviating from the range of this invention which was made for the purpose of explanation and made clear to a claim.

[0051] Since one or more sorts of tackifier resin and the polypropylene system wax whose ring and ball method softening temperature is 120 degrees C are used, in the examples 1-4, the property excellent in a heat-resistant creep and 80-degree C peel

adhesion is shown, so that clearly from the result of Table 1 and 2. On the other hand, in the example 1 of a comparison which has not blended the non-hydrogenation tackifier 1, since the adhesive property over nylon cloth is inadequate, interface destruction is produced in a heat-resistant creep test, and exfoliation strength has also become a low value. Moreover, in the example 2 of a comparison which used together the hydrogenation system tackifier 2 (softening temperature: 85 degrees C) non-hydrogenation system tackifier (softening temperature: 110 degrees C), having produced the cohesive failure of hot melt adhesive, and having been greatly inferior as compared with 80-degree-C exfoliation strength example was admitted in the heat-resistant creep. Furthermore, in the example 3 of a comparison which does not use a polypropylene system wax at all, solidification time amount was extremely as late as three days, and lacking in practicality was checked. In the example 4 of a comparison, as a result of using the polybutylene of MI4, it was checked that viscosity lacks in practicality highly.

[0052] The hot-melt-adhesive constituent which teaches the heating kneader of 2l. of content volume 1,000g of mixture blended by the ratio shown in five to examples 5-7 and example of comparison 9 Table 3 and 4, carries out stirring mixing of this at 160 degrees C for 2 hours, and is made into the purpose was obtained. The contents of the ingredient used in the example and the example of a comparison and the physical-properties test method of a hot melt constituent are shown below.

[0053] [The contents of the ingredient]

(1) Polypropylene S-13B (Ube Rexene, Inc. make) melt index 700g / 10 minutes (230 degrees C and 2.160 kgf/cm²), melting point =157-degree-C (2) polybutylene (2) DP0800 (product made from shell JAPAN, Inc.) melt index 200g / 10-minute (190-degree-C and 2.160 kgf/cm²), and melting point =125-degree-C (3) hydrogenation system tackifier resin (3)

Al Cong P140 (Arakawa chemical-industry incorporated company make and C9 aromatic series system perfect hydrogenation petroleum resin) ring-and-ball-method softening temperature = 140-degree-C (4) hydrogenation system tackifier resin (2)

Al Cong P85 (Arakawa chemical-industry incorporated company make and C9 aromatic series system perfect hydrogenation petroleum resin) ring-and-ball-method softening temperature =85 degree-C (5) rosin-ester super ester A-125 (Arakawa chemical-industry incorporated company make, non-hydrogenation rosin ester system tackifier resin) ring-and-ball-method softening temperature = 125-degree-C (6) anti-oxidant NORUGA NOx 1010 (Ciba-Geigy Japan, Inc. make)

HINDATO phenolic antioxidant [solvent system adhesives]

(1) Highbon XA 223-10 (Hitachi Kasei Polymer Co., Ltd. make)

1kg of mixture blended by the ratio shown in the polychloroprene adhesive [adjustment approach of hot-melt-adhesive constituent] table 3 was taught to the heating kneader of 2l. of content volume, and stirring mixing of this was carried out at 160 degrees C for 2 hours.

[0054] [The characteristic test approach of hot melt adhesive]

(1) It carried out by the same approach as the melt viscosity examples 1-4.

[0055] (2) It carried out by the same approach as the ring and ball method softening temperature examples 1-4.

[0056] (3) It carried out by the same approach as the heat-resistant creep examples 1-4.

[0057] (4) It carried out by the same approach as examples 1-4 in breakaway strength.
 [0058] It is hot melt adhesive of combination which uses a curtain spray for the polypropylene shaping material which has the irregularity for [heat test of lamination article] automobile doors, and is shown in Table 3 100 g/m² After applying by coverage, Spray a 200-degree C hot air for 10 seconds, and a hot-melt-adhesive spreading side is heated in skin temperature of 120 degrees C. After [of an open time] 10 seconds, lamination and 20-degree C metal mold were used for polyester system textile-fabrics tabulation hide material with the hot-melt-adhesive skin temperature of 70 degrees C, the cold press was carried out on pressure 0.1 kgf/cm² and the conditions for 20 seconds, and it considered as the test piece. However, hot melt skin temperature is made into 80 degrees C by shortening hot-air blasting time amount in the example 8 of a comparison at 8 seconds, and it is ***** about polyester system textile-fabrics tabulation hide material at the hot-melt-adhesive temperature of 70 degrees C immediately after heating. Moreover, in the example 9 of a comparison, hot-melt-adhesive skin temperature at the time of lamination was made into 50 degrees C by making an open time into 20 seconds.

[0059] Moreover, the solvent system adhesives shown in the example 7 of a comparison are 100g/m² with a spray. After applying by coverage, after 1 minute, lamination and 20-degree C metal mold were used, and the cold press of the polyester system cloth tabulation hide material was carried out on pressure 0.1 kgf/cm² and the conditions for 20 seconds, and it was used as the test piece. These test pieces were left in 80-degree-C ambient atmosphere after [of lamination] 5 minutes for 1 hour, and the existence of the float of the lamination section was checked.

[0060] A result is shown in Table 3.

[0061]

[Table 3]

		実施例 5	実施例 6	実施例 7	比較例 5	比較例 6	比較例 7	比較例 8	比較例 9
配合量 (重量部)	ポリプロピレン (MFR 700, 融点 157℃)	20			20	20	溶剤系 接着剤	20	20
	ポリブチレン (2) (MI 200, 融点 125℃)	80	100	100	80	80		80	80
	水添系粘着付与剤樹脂 (3) (環球法軟化点 140℃)	80	80	100		150		80	80
	水添系粘着付与剤樹脂 (2) (環球法軟化点 85℃)				140				
	ロジンエステル (環球法軟化点 125℃)	40	40	50		150		40	40
	酸化防止剤	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1		0.1	0.1
物性	溶融粘度 (mPa・s/180℃)	40,000	20,000	12,000	38,000	29,000	—	40,000	40,000
	環球法軟化点 (℃)	150	134	130	110	144	—	150	150
	耐熱クリープ (はく離長さ mm)	1	5	20	全面 C	全面 A	20	1	1
	はく離強さ (kgf/inch)	20℃ 80℃	37 10	22 7	19 5	40 1	7 3	18 8	37 10
貼合せ直後の 耐熱試験 (80℃)		活性温度 (℃) 貼合せ温度 (℃)	120 70	120 70	120 70	120 70	— 70	80 70	120 70
結 果		異状 無し	異状 無し	異状 無し	凹凸部 に浮き	凹凸部 に浮き	凹凸部 に浮き	凹凸部 に浮き	凹凸部 に浮き

A : ホットメルト接着剤とポリプロピレン板の界面破壊

C : ホットメルト接着剤の凝集破壊

[0062] In the examples 5-7, ring and ball method softening temperature shows the property which was [in / the ***** sake for the 120 - 150 weight sections / to the crystalline polyolefine 100 weight section / a heat-resistant creep and breakaway

strength] excellent in tackifier resin 120 degrees C or more so that clearly from the result of Table 3.

[0063] On the other hand, in the example 5 of a comparison which used tackifier resin of 85 degrees C of ring and ball method softening temperatures, cohesive failure is produced in a heat-resistant creep test, and 80-degree C breakaway strength also serves as a low value. Moreover, the immediately after [lamination] heat test has also produced the float in concave heights. In the example 6 of a comparison, since tackifier resin of 120 degrees C or more of ring and ball method softening temperatures is used for the 300 weight sections and an excess to the crystalline polyolefine 100 weight section, an adhesive property is not enough and the immediately after [lamination] heat test has also produced the float in concave heights.

[0064] On the other hand, in the example 7 of a comparison which is the conventional technique, although a heat-resistant creep and breakaway strength were good, in the heat test just behind lamination, it was checked that the float has arisen under the effect of a residual solvent.

[0065] Moreover, although the same combination as an example 5 is used in the examples 8 and 9 of a comparison, in the example 8 of a comparison, the activation temperature of hot melt adhesive is low, and since the temperature at the time of lamination is low, the immediately after [lamination] heat test has also produced the float in concave heights in the example 9 of a comparison.

[0066]

[Effect of the Invention] Since more than unties the hot-melt-adhesive constituent by this invention and it has a configuration, there is no problem of contamination by the vaporization of the solvent to the inside of atmospheric air like solvent type adhesive at the time of adhesion, and it does not ruin its health of an operator. And the adhesive property and thermal resistance which the low polar adherends, or this and the woody material like polyolefine, a textile, etc. solved, and were excellent in adhesion with a high polarity object can also be satisfied collectively. Moreover, since adhesion time amount is very short, in adhesion of the epidermis material to a crevice, press time amount is very short and workability is not only good, but it ends.

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-181386

(43) 公開日 平成11年(1999) 7月6日

(51) Int.Cl.⁸

識別記号

F I

C 0 9 J 123/20

C 0 9 J 123/20

B 6 0 R 13/00

B 6 0 R 13/00

13/02

13/02

Z

C 0 9 J 125/04

C 0 9 J 125/04

157/02

157/02

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 8 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号

特願平9-357653

(22) 出願日

平成9年(1997)12月25日

(71) 出願人 000233170

日立化成ポリマー株式会社

東京都千代田区内神田1-13-7

(71) 出願人 000002967

ダイハツ工業株式会社

大阪府池田市ダイハツ町1番1号

(72) 発明者 藤田 泰浩

千葉県野田市中里200番地 日立化成ポリ

マー株式会社野田工場内

(72) 発明者 鶴野 吉信

大阪府池田市桃園2丁目1番1号 ダイハ

ツ工業株式会社内

(74) 代理人 弁理士 八田 幹雄 (外1名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ホットメルト接着剤組成物および自動車用内装材の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 低極性被着体同士あるいはこれと高極性被着体との接着に用いる耐熱性に優れたホットメルト接着剤組成物および該接着剤組成物を用いてなる自動車用内装材の製造方法を提供。

【解決手段】 (A) メルトインデックス20~2,000g/10分(190℃、2.16kgf/cm²)の結晶性ポリブチレン100重量部に対し、(B)水添系粘着付与剤樹脂20~200重量部、(C)テルペン変性フェノール樹脂、芳香族系石油樹脂、スチレン系樹脂およびロジン系樹脂よりなる群から選ばれた少なくとも1種の未水添粘着付与剤樹脂20~200重量部および(D)ポリプロピレン系ワックス0.1~100重量部を必須成分とし、かつ該結晶性ポリブチレン(A)の配合量が組成物全体の10~60重量%であることを特徴とするホットメルト接着剤組成物および該接着剤を使用することにより自動車用内装材を製造する。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 (A) メルトインデックス20～2,000g/10分(190℃、2.16kgf/cm²)の結晶性ポリブチレン100重量部に対し、(B) 水添系粘着付与剤樹脂20～200重量部、(C) テルペン変性フェノール樹脂、芳香族系石油樹脂、スチレン系樹脂およびロジン系樹脂よりなる群から選ばれた少なくとも1種の未水添粘着付与剤樹脂20～200重量部および(D) ポリプロピレン系ワックス0.1～100重量部を必須成分とし、かつ該結晶性ポリブチレン(A)の配合量が組成物全体の10～60重量%であることを特徴とするホットメルト接着剤組成物。

【請求項2】 水添系粘着付与剤樹脂(B)および/または未水添粘着付与剤樹脂(C)のうち、環球法軟化点120℃以上の樹脂の少なくとも1種が、該結晶性ポリブチレン(A)100重量部当たり20～200重量部含有されてなる請求項1に記載のホットメルト接着剤組成物。

【請求項3】 該結晶性ポリブチレンのX線回折法による結晶化度が30～80%である請求項1または2に記載のホットメルト接着剤組成物。

【請求項4】 低極性被着体同士または該低極性被着体と高極性被着体との接着に使用される請求項1～3のいずれか一つに記載のホットメルト接着剤組成物。

【請求項5】 自動車用ポリオレフィン成形体に、布帛製表皮材を接着する工程において、請求項1～4のいずれか一つに記載のホットメルト接着剤を該ポリオレフィン成形体および/または該布帛製表皮材の表面に塗布し、塗布直後または塗布後ホットメルト接着剤組成物が冷却固化したのちに、該ホットメルト接着剤組成物を再加熱することにより活性化し、接着力を顕在化した状態で該ポリオレフィン成形体と布帛製表皮材とを接着することを特徴とする自動車用内装材の製造方法。

【請求項6】 該ホットメルト接着剤組成物の塗布量が20～500g/m²である請求項5に記載の方法。

【請求項7】 活性化温度が90～150℃である請求項5または6に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、ホットメルト接着剤組成物および該接着剤組成物を用いてなる自動車用内装材の製造方法に関するものである。特に、ポリオレフィンのごとき低極性被着体同士あるいはこれと本質材や布帛等の高極性被着体との接着に用いる耐熱性に優れたホットメルト接着剤組成物および該接着剤組成物を用いてなる自動車用内装材の製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】ホットメルト接着剤は、熔融状態で塗布し、冷却すれば接着が完了するという簡便性、無溶剤等のために環境適合性等の利点から、種々の産業で使用さ

れている。ベースポリマーとしてはエチレン-酢酸ビニル共重合体等のエチレン系共重合体、ポリエチレン、非晶性ポリプロピレン、結晶性ポリプロピレン、結晶性ポリブチレン、スチレン系ブロックコポリマー、ポリアミド、ポリエステルなどが主に用いられ、これに多種粘着付与樹脂、オイル、ワックスその他各種添加物が加えられてホットメルト接着剤を得ている。しかし、エチレン系共重合体、ポリエチレン、非晶性ポリプロピレン、スチレン系ブロックコポリマーをベースポリマーとした場合、ポリプロピレン等の低極性被着体同士、またはこれと木質材や布帛等の高極性物の接着性能を発現することは可能であるが、耐熱性に乏しいという欠点を有している。

【0003】一方、結晶性ポリプロピレン、ポリアミド、ポリエステル等を使用した場合、ホットメルト自体の耐熱性を得ることができる反面、ポリプロピレン等の低極性被着体同士、またはこれと木質材や布帛等の高極性物の接着性は不十分である。また、結晶性ポリブチレンをホットメルト接着剤のベースポリマーとした例も知られている(シェルジャパン株式会社の技術資料)。具体的には、ポリブチレンと粘着付与剤からなる組成物を用いた例が示されている。

【0004】しかしながら、これまで結晶性ポリブチレンについては、粘着付与剤樹脂の用い方および他の配合剤による結晶性のコントロールや接着性のバランスのとり方が知られておらず、実用性に乏しいものであった。

【0005】一方、ポリプロピレンのごときポリオレフィン成形体に、布帛製表皮材を接着することにより自動車用内装材を製造する際に、例えばクロロブレン系ゴムを主成分とする溶剤型接着剤をスプレー等により塗布し、溶剤乾燥後に布帛製表皮材を貼合わせて成形接着させる方法が採られてきた。

【0006】しかしながら、このような製造方法では、大気中に溶剤が揮散するため環境汚染を起す恐れがあり、また作業環境性においても好ましくなかった。また、溶剤型接着剤は、接着完了までに長時間を要するので作業性が低だけでなく、凹部に貼着する場合には、接着が完了するまで表皮材を押圧しておく必要があるもので、さらに作業性が低くなる。さらに、溶剤型接着剤は、成形接着後も数時間にわたって微量の残留溶剤が存在するため、特に初期のクリープ特性に劣るという欠点をも有していた。

【0007】他方、ホットメルト接着剤を用いた場合には、上記の環境汚染性や作業環境性の問題が解決されるが、従来から提案されているホットメルト接着剤ではポリプロピレンに対する接着性が十分でなく、また本用途に要求される80℃程度の耐熱特性を満足させることが困難であった。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】したがって、本発明の

しくは30~150重量部用いられる。すなわち、20重量部未満では、少ないと木質材や布帛等の高極性物に対する接着性が十分でなく、一方、200重量部を越えるとポリプロピレン等の低極性物に対する接着性が十分でない。

【0023】本発明において、水添系粘着付与剤樹脂および/または未水添粘着付与剤樹脂中に、環球法軟化点120℃以上、好ましくは120~150℃の樹脂1種以上を結晶性ポリブチレン100重量部に対し20~200重量部含有することが好ましい。すなわち、環球法軟化点が120℃未満の樹脂のみを使用した場合、あるいは添加量が20重量部より少ない場合、十分な耐熱特性が得られ難い。一方、添加量が200重量部より多いと固化が速く、十分なオープンタイムが得られ難い。

【0024】また、本発明のホットメルト接着剤組成物には各種被着体に対する接着性を調節するため、テルペン樹脂、脂肪族系石油樹脂、それらの水素添加した樹脂等の各種粘着付与剤樹脂を混合することができる。

【0025】本発明のホットメルト接着剤組成物は、ポリブチレンの結晶化促進および耐熱性の向上を目的として、さらにポリプロピレン系ワックスを結晶性ポリブチレン100重量部に対し0.1~100重量部好ましくは1~50重量部熔融混合してなる。このようなワックスは、融点140℃以上、好ましくは融点140~160℃の結晶性ワックスである。これ以外のワックスを用いた場合には、融点が低く、十分な耐熱性が発現しない。ポリプロピレンワックスの固化速度に与える影響は極めて顕著であり、極小値の0.1重量部から固化時間は飛躍的に短縮される。その作用機構は、結晶化の速いポリプロピレンワックスが、ポリブチレンの結晶化を促進する造核剤となり、局部的な結晶化の開始により全体の結晶化を誘発するものと推定される。したがって、ポリプロピレン系ワックスの最低配合量は0.1重量部であり、これより少ないと、ポリブチレンの結晶化速度が遅く、十分な固化速度が得られない。また、100重量部より多いと、固化速度が速く、十分なオープンタイムが得られない。

【0026】本発明に使用するホットメルト接着剤組成物は、さらに必要に応じて酸化防止剤、無機充填剤、着色剤等の各種添加剤を熔融混合することができる。本発明に使用するホットメルト接着剤組成物は、例えば上記の各材料を熔融攪拌混合装置に投入し、150~180℃程度、好ましくは160~170℃程度の温度で1~3時間加熱混合して得られる。

【0027】本発明において、ポリプロピレン等の低極性物や木質材や布帛等の高極性物の一方もしくは両方にホットメルト接着剤組成物を塗付する方法としては、霧化スプレーやスパイラルスプレー、カーテンスプレー、ロールコーター等による方法が挙げられる。

【0028】したがって、ホットメルト接着剤はこれら

の塗布方法に適した熔融粘度を有する必要がある。具体的には、スプレーやカーテンスプレーの場合は100~50,000mPa・s、好ましくは500~20,000mPa・sである。500より低い場合は、塗布時に飛び散りが生じ、50,000より高い場合は、十分な塗布量が確保できない。また、ロールコーター塗布の場合の熔融粘度は100~100,000mPa・s、好ましくは500~50,000mPa・sである。100より低い場合は、タレが生じ、100,000より高い場合は十分な塗布量が確保できない。

【0029】また、ホットメルト接着剤の塗布量は、20~500g/m²、好ましくは100~200g/m²である。20g/m²未満では接着力が十分でなく、500g/m²を越えると、貼合せ時に布帛表皮材の表面にホットメルト接着剤が滲み出す可能性がある。

【0030】また、本発明においてホットメルト接着剤組成物を活性化すると、加熱して熔融または軟化して接着力を顕在化させることを意味し、加熱手段としては熱風、赤外線もしくはホットプレス等を用いることができ、温度としては熱風の場合を例にとると、100~400℃、好ましくは200~300℃の熱風が用いられる。

【0031】本発明のホットメルト接着剤組成物が使用されるポリプロピレン等の低極性被着体及び木質材や布帛等の高極性物とは、自動車内装材等の耐熱性が必要とされる部位に使用される材料であり、低極性材料としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン-プロピレン共重合体等が挙げられる。また、高極性材料としては、木、紙、金属およびナイロンやポリエステル、ポリカーボネート、アクリル等を主原料としたプラスチック類や繊維類等が挙げられ、これらは通常、織布、不織布、編布等の布帛の形で使用される。

【0032】本発明における自動車用内装材とは、自動車のドアのインナーパネル、ドアオーナメント天井材、トランク内緩衝材、トランク内カーペット、フロアカーペット、座席シート等があり、これらはポリオレフィン、特にポリプロピレンの成形体の表面に織布、編布、不織布、フェルト等の布帛を接着してなるものである。

【0033】また、本発明においてホットメルト接着剤を活性化すると、加熱して熔融軟化して接着力を顕在化させることを意味し、加熱手段としては熱風、赤外線もしくはホットプレス等が使用される。活性化に際しては、ホットメルト接着剤が融点以上に加熱される必要がある。また、融点を大きく上回る温度ではホットメルト接着剤がタレ落ちる恐れがあり、またホットメルトが塗布されたポリプロピレン成形材もしくは布帛製表皮材の変形をも引き起こす恐れもある。

【0034】したがって、活性化に要するホットメルト温度は90~150℃、好ましくは100~140℃である。熱風、赤外線もしくはホットプレス等のいずれの

10

20

30

40

50

加熱手段を用いる場合も、ホットメルト接着剤がこの温度範囲になるように、熱源温度と加熱時間を調整する必要がある。

【0035】また、加熱方法が熱風や赤外線の場合は、ホットメルト接着剤が活性化した状態、すなわち加熱されたホットメルト接着剤が完全に冷却されず、表面温度が60℃以上で表面タックが残っている状態で貼合せを行う必要がある。

【0036】加熱方法が熱風や赤外線の場合は、貼合せ時に圧着を行い、またホットプレスの場合はプレス後ホットメルト接着剤の温度が60℃以上の状態で、圧着を行う必要がある。圧着には、通常金型を用いたプレス方法が使用され、そのプレス圧力は0.001~1kgf/cm²、好ましくは0.01~0.5kgf/cm²である。プレス圧力が0.001kgf/cm²未満では十分な接着性が得られず、1kgf/cm²を越えるとポリプロピレン成形材の変形が起こる恐れがある。圧着時間は、金型、雰囲気温度が20℃の場合、10~30秒である。10秒未満では、ホットメルト接着剤が十分に固化しない、また、30秒以内に固化が完了するため、それ以上の圧着は必要ない。

【0037】本発明のホットメルト接着剤組成物は、結晶性のポリブチレンと高軟化点を有する粘着付与剤および、結晶化速度と熔融粘度を調整するポリプロピレン系ワックスとを用いることで、ポリプロピレン等の低極性物同志またはこれと木質剤や布地等の高極性物の接着性および耐熱特性を備えることができる。

【0038】

【実施例】以下、本発明を実施例によって説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0039】実施例1~4および比較例1~4

表1および表2に示す比率で配合した混合物1,000gを内容積2リットルの加熱ニーダーに仕込み、これを160℃で2時間攪拌混合し、目的とするホットメルト接着剤組成物を得た。なお、表2には、比較例1~4についても併記した。実施例および比較例で用いた材料の内容容ならびにホットメルト接着剤組成物の特性試験方法を下記に示す。

【0040】[材料の内容容]

(1) ポリブチレン (1)

DC8910 (シェルジャパン株式会社製) メルトインデックス=1000g/10分 (190℃、2.160kgf/cm²)、融点=90℃

(2) ポリブチレン (2)

DP0800 (シェルジャパン株式会社製) メルトインデックス=200g/10分 (190℃、2.160kgf/cm²)、融点=125℃

(3) ポリブチレン (3)

DP0300 (シェルジャパン株式会社製) メルトインデックス=4g/10分 (190℃、2.160kgf

/cm²)、融点=125℃

(4) 水添系粘着付与剤樹脂 (1)

アルコンP125 (荒川化学工業株式会社製、芳香族系完全水添石油樹脂) 環球法軟化点=125℃

(5) 水添系粘着付与剤樹脂 (2)

アルコンP85 (荒川化学工業株式会社製、芳香族系完全水添石油樹脂) 環球法軟化点=85℃

(6) 未水添粘着付与剤樹脂 (1)

YSポリスターT130 (ヤスハラケミカル株式会社製、テルペンフェノール共重合樹脂) 環球法軟化点=130℃

(7) 未水添粘着付与剤樹脂 (2)

YSポリスターT100 (ヤスハラケミカル株式会社製、テルペンフェノール共重合樹脂) 環球法軟化点=100℃

(8) 芳香族系石油樹脂

ペトコール140 (東ソー株式会社製、未水添芳香族系粘着付与剤樹脂) 環球法軟化点=135℃

(9) ポリプロピレン系ワックス

ビスコール550P (三洋化成株式会社製) 環球法軟化点=150℃

(10) 酸化防止剤

イルガノックス1010 (日本チバガイギー株式会社製)

ヒンダートフェノール系酸化防止剤

[ホットメルト接着剤組成物の特性試験方法]

(1) 熔融粘度

JIS K-6862ホットメルト接着剤の熔融粘度測定方法に準拠して、180℃における熔融粘度を測定した。

【0041】(2) 環球法軟化点

JIS K-6863ホットメルト接着剤の環球法軟化点測定方法に準拠して、環球法軟化点を測定した。

【0042】(3) 耐熱クリープ

厚さ2mm、幅25mmおよび長さ120mmのポリプロピレン板にホットメルト接着剤組成物を約100μmの厚さに塗布し、直ちに幅25mm、長さ150mmのナイロン布を合わせてハンドローラーで圧着して接着したものを試験片とした。この試験片を20℃雰囲気中に24時間養生後、布製表皮材の一端に90°方向に200gの荷重を吊るし、80℃の温度条件下で24時間放置し、接着部分のはがれ長さを測定した。

【0043】(4) はく離強さ

上記(9)と同様の試験片を20℃および80℃の温度下で引張試験機を用いて、180°方向に200mm/minの速度ではく離試験を行った。

【0044】(5) オープンタイム

ポリプロピレン基材上にホットメルト接着剤組成物を約100μmの厚さに塗布し、室温まで冷却後、熱風によりホットメルト接着剤組成物表面を130℃に加熱し

た。

【0045】加熱を止めた後、ナイロン布を貼り合わせることができる最長の時間をオープンタイムとした。

【0046】(6) 固化時間

上記(3)と同様の試験片を作成後、耐熱クリープ試験*

*においてホットメルト接着剤組成物の凝集破壊が生じない最短の時間を固化時間とした。

【0047】結果を表1および表2に示す。

【0048】

【表1】

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4
配 合 重 量 部	ポリブチレン(1) (MI 1000)	100	100	100	
	ポリブチレン(2) (MI 200)				100
	水添系粘着付与剤樹脂(1) (軟化点:125℃)	100	75		100
	水添系粘着付与剤樹脂(2) (軟化点:85℃)			40	
	未水添粘着付与剤樹脂(1) (軟化点:130℃)	40			40
	未水添粘着付与剤樹脂(2) (軟化点:110℃)		40		
	芳香族系石油樹脂 (軟化点:135℃)			100	
	ポリプロピレン系ワックス	40	1	40	40
	酸化防止剤	1	1	1	1
	溶解粘度(mPa·s/180℃)	12,000	40,000	12,000	29,000
物 性	環球法軟化点(℃)	130	128	130	133
	耐熱クリープ(はく離長さmm)	10	20	25	5
	はく離強さ(kgf/inch) 20℃	25	27	22	28
	80℃	8	7	8	11
	オープンタイム(秒)	15	30	14	14
	固化時間(秒)	10	30	10	8

【0049】

※ ※【表2】

		比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
配 合 重 量 部	ポリブチレン(1) (MI 1000)	100	100	100	
	ポリブチレン(3) (MI 4)				100
	水添系粘着付与剤樹脂(1) (軟化点:125℃)	175		100	100
	水添系粘着付与剤樹脂(2) (軟化点:85℃)		100		
	未水添粘着付与剤樹脂(1) (軟化点:130℃)			40	40
	未水添粘着付与剤樹脂(2) (軟化点:110℃)		40		
	芳香族系石油樹脂 (軟化点:135℃)				
	ポリプロピレン系ワックス	40	40		40
	酸化防止剤	1	1	1	1
	溶解粘度(mPa·s/180℃)	12,000	11,000	40,000	400,000
物 性	環球法軟化点(℃)	130	125	122	141
	耐熱クリープ(はく離長さmm)	全面A	全面C	全面C	2
	はく離強さ(kgf/inch) 20℃	5	30	32	11
	80℃	1	4	0.5	8
	オープンタイム(秒)	15	18	80	5
	固化時間(秒)	—	—	3日	5

A:ホットメルト接着剤組成物とナイロン布の界面破壊

C:ホットメルト接着剤組成物の凝集破壊

【0050】前記実施例は、説明を目的としてなされたもので、特許請求の範囲に明らかにされた本発明の範囲から逸脱することなく、割合、手順および材料において変え得ることが明らかである。

【0051】表1および表2の結果から明らかなように、実施例1～4では、環球法軟化点が120℃の粘着付与剤樹脂1種以上とポリプロピレン系ワックスを用いているため、耐熱クリープ、80℃の剥離接着強さで優

れた特性を示している。これに対して、未水添粘着付与剤1を配合していない比較例1では、ナイロン布に対する接着性が不十分なため、耐熱クリープ試験において界面破壊を生じ、剥離強さも低い値になっている。また、水添系粘着付与剤2（軟化点：85℃）未水添系粘着付与剤（軟化点：110℃）を併用した比較例2では、耐熱クリープでは、ホットメルト接着剤の凝集破壊を生じ、また80℃剥離強さも実施例に比較し大きく劣っていることが認められた。さらに、ポリプロピレン系ワックスを全く用いない比較例3においては、固化時間が3日と極端に遅く、実用性に欠くことが確認された。比較例4では、MI4のポリブチレンを使用した結果、粘度が高く実用性に欠くことが確認された。

【0052】実施例5～7および比較例5～9

表3および表4に示す比率で配合した混合物1,000gを内容積2リットルの加熱ニーダーに仕込み、これを160℃で2時間攪拌混合し、目的とするホットメルト接着剤組成物を得た。実施例および比較例で用いた材料の内容容ならびにホットメルト組成物の物性試験方法を下記に示す。

【0053】【材料の内容容】

(1) ポリプロピレン

S-13B（宇部レキセン株式会社製）メルトインデックス700g/10分（230℃、2.160kgf/cm²）、融点=157℃

(2) ポリブチレン (2)

DP0800（シェルジャパン株式会社製）メルトインデックス200g/10分（190℃、2.160kgf/cm²）、融点=125℃

(3) 水添系粘着付与剤樹脂 (3)

アルコンP140（荒川化学工業株式会社製、C、芳香族系完全水添石油樹脂）環球法軟化点=140℃

(4) 水添系粘着付与剤樹脂 (2)

アルコンP85（荒川化学工業株式会社製、C、芳香族系完全水添石油樹脂）環球法軟化点=85℃

(5) ロジンエステル

スーパーエステルA-125（荒川化学工業株式会社製、未水添ロジンエステル系粘着付与剤樹脂）環球法軟化点=125℃

(6) 酸化防止剤

ノルガノックス1010（日本チバガイギー株式会社製）

ヒンダートフェノール系酸化防止剤

【溶剤系接着剤】

(1) ハイボンXA223-10（日立化成ポリマー株式会社製）

クロロブレン系接着剤

【ホットメルト接着剤組成物の調整方法】表3に示す比率で配合した混合物1kgを内容積2リットルの加熱ニーダーに仕込み、これを160℃で2時間攪拌混合した。

【0054】【ホットメルト接着剤の特性試験方法】

(1) 熔融粘度

実施例1～4と同様の方法で行なった。

【0055】(2) 環球法軟化点

実施例1～4と同様の方法で行なった。

【0056】(3) 耐熱クリープ

実施例1～4と同様の方法で行なった。

【0057】(4) はく離強さ

実施例1～4と同様の方法で行なった。

【0058】【貼合せ品の耐熱試験】自動車ドア用の凹凸を有するポリプロピレン成形材にカーテンスプレーを用いて表3に示す配合のホットメルト接着剤を100g/m²の塗布量で塗布した後、200℃のホットエアーを10秒吹き付けてホットメルト接着剤塗布面を表面温度120℃に加熱し、オープンタイム10秒後にホットメルト接着剤表面温度70℃でポリエステル系織布製表皮材を貼合わせ、20℃の金型を用いて圧力0.1kgf/cm²、20秒の条件でコールドプレスし、試験片とした。ただし、比較例8ではホットエアー吹き付け時間を8秒に短縮することでホットメルト表面温度を80℃とし、加熱直後にホットメルト接着剤温度70℃でポリエステル系織布製表皮材を貼合わせた。また、比較例9では、オープンタイムを20秒とすることで、貼合わせ時のホットメルト接着剤表面温度を50℃とした。

【0059】また、比較例7に示す溶剤系接着剤は、スプレーにて100g/m²の塗布量で塗布した後、1分後にポリエステル系布製表皮材を貼合わせ、20℃の金型を用いて圧力0.1kgf/cm²、20秒の条件でコールドプレスし、試験片とした。これらの試験片を、貼合せ5分後に80℃雰囲気中に1時間放置し、貼合せ部の浮きの有無を確認した。

【0060】結果を表3に示す。

【0061】

【表3】

		実施例5	実施例6	実施例7	比較例5	比較例6	比較例7	比較例8	比較例9
配合量(重量部)	ポリプロピレン (MFR 700, 融点 157℃)	20			20	20	溶剤系 接着剤	20	20
	ポリブチレン (2) (MI 200, 融点 125℃)	80	100	100	80	80		80	80
	水添系粘着付与剤樹脂 (3) (環球法軟化点 140℃)	80	80	100		150		80	80
	水添系粘着付与剤樹脂 (2) (環球法軟化点 85℃)				140				
	ロジンエステル (環球法軟化点 125℃)	40	40	50		150		40	40
	酸化防止剤	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1		0.1	0.1
物性	溶融粘度 (mPa·s/180℃)	40,000	20,000	12,000	38,000	29,000	—	40,000	40,000
	環球法軟化点 (℃)	150	134	130	110	144	—	150	150
	耐熱クリープ (はく離長さ mm)	1	5	20	全面 C	全面 A	20	1	1
	はく離強さ (kgf/inch) 20℃	37	22	19	40	7	18	37	37
	80℃	10	7	5	1	3	8	10	10
貼合せ直後の耐熱試験 (80℃)	活性温度 (℃)	120	120	120	120	120	—	80	120
	貼合せ温度 (℃)	70	70	70	70	70	—	70	70
	結果	異状無し	異状無し	異状無し	凹凸部に浮き	凹凸部に浮き	凹凸部に浮き	凹凸部に浮き	凹凸部に浮き

A: ホットメルト接着剤とポリプロピレン板の界面破壊

C: ホットメルト接着剤の凝集破壊

【0062】表3の結果から明らかなように、実施例5～7では、環球法軟化点が120℃以上の粘着付与剤樹脂を結晶性ポリオレフィン100重量部に対し120～150重量部用いているため、耐熱クリープ、はく離強さに於いて優れた特性を示している。

【0063】これに対して、環球法軟化点85℃の粘着付与剤樹脂を使用した比較例5では耐熱クリープ試験で凝集破壊を生じ、80℃のはく離強さも低い値となっている。また、貼合せ直後耐熱試験でも凹凸部に浮きを生じている。比較例6では、環球法軟化点120℃以上の粘着付与剤樹脂を結晶性ポリオレフィン100重量部に対し300重量部と過剰に用いているために、接着性が

【0064】一方、従来技術である比較例7では、耐熱クリープやはく離強さは良好であるが、貼合せ直後の耐熱試験では残留溶剤の影響で浮きが生じていることが確*

* 認められた。

20 【0065】また、比較例8および9では、実施例5と同一の配合を用いているが、比較例8ではホットメルト接着剤の活性化温度が低く、比較例9では貼合せ時の温度が低いために貼合せ直後耐熱試験でも凹凸部に浮きを生じている。

【0066】

30 【発明の効果】本発明によるホットメルト接着剤組成物は、以上のごとき構成を有するものであるから、溶剤型接着剤のように接着作業時に大気中への溶剤の揮散による汚染の問題がなく、作業者の健康を損なうこともない。かつポリオレフィンのごとき低極性被着体同士あるいは、これと木質材や布帛等のごとき高極性物との接着において優れた接着性および耐熱性をも併せて満足させることができる。また、接着時間が極めて短いので、作業性が良好であるだけでなく、凹部への表皮材の接着作業において押圧時間が極めて短くてすむ。

フロントページの続き

(51) Int. Cl.⁶

識別記号

F I

C 0 9 J 161/14

C 0 9 J 161/14

191/06

191/06

193/04

193/04

201/02

201/02

(72) 発明者 山口 進

大阪府池田市桃園2丁目1番1号 ダイハツ工業株式会社内